

日本特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2004年 7月 6日

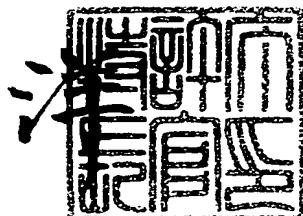
出願番号  
Application Number: 特願2004-199639

パリ条約による外国への出願に用いる優先権の主張の基礎となる出願の国コードと出願番号  
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

出願人  
Applicant(s): 積水化学工業株式会社

2005年 8月24日

小川



特許長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

【宣状】  
【整理番号】 04P00798  
【提出日】 平成16年 7月 6日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C03C 27/12  
【発明者】  
【住所又は居所】 滋賀県甲賀郡水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内  
【氏名】 深谷 重一  
【発明者】  
【住所又は居所】 滋賀県甲賀郡水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内  
【氏名】 八田 文吾  
【特許出願人】  
【識別番号】 000002174  
【氏名又は名称】 積水化学工業株式会社  
【代表者】 大久保 尚武  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 005083  
【納付金額】 16,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

【請求項 1】

ポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽粒子及び耐湿性向上剤を含有することを特徴とする  
合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】

耐湿性向上剤は、両親媒性物質及び／又は界面活性剤であることを特徴とする請求項 1 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 3】

耐湿性向上剤は、S P 値が 15.0 ~ 35.0 MPa<sup>1/2</sup> であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 4】

耐湿性向上剤は、常温常圧における比誘電率が 15 ~ 50 であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 5】

耐湿性向上剤は、リン酸エステル系化合物であることを特徴とする請求項 1、2、3 又は 4 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 6】

熱線遮蔽粒子は、錫ドープ酸化インジウム (ITO) 微粒子、アンチモンドープ酸化錫 (ATO) 微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛 (AZO) 微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛 (IZO) 微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、アンチモン酸亜鉛、6 ホウ化ランタン微粒子及び 6 ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも 1 種であることを特徴とする請求項 1、2、3、4 又は 5 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 7】

キレート剤及び／又は少なくとも 1 つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を含有することを特徴とする請求項 1、2、3、4、5 又は 6 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 8】

キレート剤は、アセチルアセトンであることを特徴とする請求項 7 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 9】

少なくとも 1 つ以上のカルボキシル基をもつ化合物は、2 エチルヘキサン酸であることを特徴とする請求項 7 記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 10】

請求項 1、2、3、4、5、6、7、8 又は 9 記載の合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

従来より、合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損しても、ガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラス等として広く使用されている。このような合わせガラスとしては、少なくとも一対のガラス間に、例えば、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させたもの等が挙げられる。

## 【0003】

しかし、このような合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは安全性には優れているものの、遮熱性に劣るという問題点があった。光線のなかでも、可視光より長い780nm以上の波長を持つ赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約10%程度と小さいものの、熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると熱として放出され温度上昇をもたらすことから、一般に熱線と呼ばれている。従って、例えば、自動車のフロントガラスやサイドガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線（熱線）を遮断できるようにすれば、遮熱性が高まり、自動車内部の温度上昇を抑えることができる。近年の傾向として、自動車等におけるガラス開口部面積が増大しており、合わせガラスの遮熱性を高くし、ガラス開口部に熱線カット機能を付与する必要が増大している。

## 【0004】

これに対して、特許文献1には、熱線遮蔽性能を有する錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の熱線遮蔽粒子をポリビニルアセタール樹脂に分散させてなる合わせガラス用中間膜が開示されている。このような合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは、遮熱性、電磁波透過性に優れたものとなる。

## 【0005】

このような合わせガラス用中間膜の問題点のひとつとして、ポリビニルアセタール樹脂は吸湿性が高く、吸湿によるヘイズ値の上昇が挙げられる。またこのような合わせガラス用中間膜の吸湿は、とりわけ車両用サイドガラス等の合わせガラスの側面が露出しているような場合において、周辺白化および発泡現象として顕著に認められる。

## 【0006】

このような合わせガラス用中間膜の吸湿を防ぐ方法として、特許文献2には、合わせガラス用中間膜中に含まれるナトリウムイオン及びカリウムイオンの濃度を一定以下に調整した合わせガラス用中間膜が開示されている。これは吸湿の原因となるナトリウムイオン及びカリウムイオンの含有量を低減することにより吸湿を防止するというものである。しかしながら、ナトリウムイオン及びカリウムイオンを一定の濃度以下にしようとするとき、選択可能な添加剤の種類や量に著しい制限があることに加え、有機酸マグネシウム塩等を接着剤調整剤として配合する必要があるという問題点もあった。そこで、より簡便でかつ低コストな耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜が求められていた。

## 【0007】

【特許文献1】 WO 01/25162号公報

【特許文献2】 特許第2999177号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0008】

本発明は、上記現状に鑑み、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することを目的とする。

## 【0009】

本発明は、ポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽粒子及び耐湿性向上剤を含有する合わせガラス用中間膜である。

以下に本発明を詳述する。

## 【0010】

合わせガラス用中間膜中において、水分は2つの形態を取り得る。即ち、1つは吸着水と呼ばれる、合わせガラス用中間膜に含まれる樹脂成分や添加剤等の官能基に吸着された形で含まれる水分であり、もう1つは、これらに吸着されていない、バルク水と呼ばれる水分である。合わせガラス用中間膜が吸湿してバルク水の含有量が増えると、バルク水同士が凝集してその粒子径が大きくなり、可視光の散乱を起こし、ヘイズの上昇という形で現れてくることがある。また、バルク水粒子を核として発泡等が起こることもある。

本発明者らは、鋭意検討の結果、特定の化合物を配合することにより極めて耐湿性に優れ、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない合わせガラス用中間膜が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【0011】

本発明の合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽粒子、及び、耐湿性向上剤を含有する。

上記ポリビニルアセタール樹脂は、合わせガラス用中間膜としての基本的な役割を果たすものである。

上記ポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、従来より合わせガラス用中間膜用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えば、アセタール化度60～75モル%、重合度800～3000のもの等が好適に用いられる。重合度が800未満であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強度が強くなりすぎて得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。なかでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニルブチラール樹脂が好適である。

## 【0012】

上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより得ることができる。上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニルを酸化することにより得られ、酸化度80～99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

上記ポリビニルアルコール樹脂の粘度平均重合度は200～3000であることが好ましい。200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、3000を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。より好ましくは500～2000である。なお、ポリビニルアルコール樹脂の粘度平均重合度及び酸化度は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

## 【0013】

上記アルデヒドとしては特に限定されず、一般に、炭素数が1～10のアルデヒドが用いられ、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バニルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n-ブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-バニルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアルデヒドである。

## 【0014】

上記熱線遮蔽粒子としては特に限定されないが、例えば、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫(ATO)微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛(

ハムノ吸収」、オレンジムドーの吸収「イムノ吸収」、物トノ吸収吸収吸収」、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、アンチモン酸亜鉛、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種が好適である。

これらの熱線遮蔽粒子は優れた赤外線（熱線）遮蔽機能を有するので、得られる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは優れた遮熱性を発現する。更に、熱線遮蔽粒子は、一定量以上を配合することにより、本発明の合わせガラス用中間膜の耐湿性を向上させる効果も有する。

#### 【0015】

上記熱線遮蔽粒子の平均粒子径は80nm以下であることが好ましい。80nmを超えると、熱線遮蔽粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる合わせガラス用中間膜の透明性が損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば自動車のフロントガラスで要求されるような高度な透明性を満足することができなくなる。より好ましくは10~80nmである。なお、上記熱線遮蔽粒子の粒子径は、光散乱測定装置（例えば、大塚電子社製「DLS-6000AL」）を使用して、Arレーザーを光源として動的光散乱法により測定することができる。

#### 【0016】

上記熱線遮蔽粒子は、合わせガラス用中間膜中に均一に微分散されていることが好ましい。均一に微分散させることにより、合わせガラスとしたときに、低ヘイズで透明性に優れるとともに、遮熱性は全体にわたって高いものとなり、更に、ガラスと中間膜との接着力が調節可能であることにより、耐貫通性も優れたものとなる。

即ち、本発明の合わせガラス用中間膜においては、上記熱線遮蔽粒子は、粒子径100nm以上の粒子が1個/ $\mu\text{m}^2$ 以下に分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で本発明の合わせガラス用中間膜を撮影、観察したときに、粒子径100nm以上の上記熱線遮蔽粒子が観察されないか、又は、観察された場合には $1\mu\text{m}^2$ の枠の中心に粒子径100nm以上の熱線遮蔽粒子を置くと、かかる $1\mu\text{m}^2$ の枠内に粒子径100nm以上の熱線遮蔽粒子が他に観察されない状態となるよう分散している。これにより、合わせガラスにしたときに、低ヘイズで透明性に優れ、全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、日立製作所社製H-7100FA型透過型電子顕微鏡等を用いて、加速電圧100kVで撮影することにより行うことができる。

#### 【0017】

上記熱線遮蔽粒子の配合量としては、ボリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.1重量部、好ましい上限が3重量部である。0.1重量部未満であると、赤外線遮蔽効果が充分に発揮されず得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの遮熱性が充分に向上しないことがあり、3重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズが大きくなったりすることがある。

#### 【0018】

本明細書において耐湿性向上剤とは、配合することにより合わせガラス用中間膜の耐湿性を向上させる剤を意味する。

上記耐湿性向上剤としては特に限定されないが、両親媒性物質及び/又は界面活性剤が好適である。両親媒性物質及び/又は界面活性剤は、熱線遮蔽粒子の分散剤としての効果も有する。

上記両親媒性物質とは、例えば、カルボキシル基、スルホニウム基、アルデヒド基、ケトイド基、アンモニウム基、ヒドロキシ基等の親水基と、炭化水素基等の疎水基とを両方有する化合物を意味する。具体的には例えば、エタノール、プロパノール等の一価アルコール；エチレングリコール等の二価アルコール等をはじめとする多価アルコール；シクロヘキサンノール等の脂環式アルコール；ベンジルアルコール等の芳香族アルコール；ヒドロキシアルデヒド、ヒドロキシケトン、ヒドロキシ酸、ステロール、テルベン類等のアルコール誘導体；酢酸、ステアリン酸等のモノカルボン酸；シウ酸等のジカルボン酸をはじめとする多官能カルボン酸；安息香酸等の芳香族カルボン酸；アクリル酸等の不飽和カルボン酸

、ノンカルロカ、酸ナイト、酸ナント、酸塩化物、酸無水物、一トフルオロカルボン酸等カルボキシル基以外の官能基を有するカルボン酸等が挙げられる。

#### 【0019】

上記界面活性剤としては特に限定されず、一般に、分散剤、乳化剤、消泡剤、潤滑剤、浸透剤、洗浄剤、ビルダー、疎水化剤、撥水剤、表面調整剤、粘度調整剤として用いられる化合物等が挙げられ、例えは、非イオン性、陽イオン性、両性、陰イオン性のものを用いることができる。

#### 【0020】

非イオン性の界面活性剤としては、例えは、ポリオキシエチレンラウリルエーテル等のポリオキシアルキレンアルキルエーテル；ポリオキシエチレンアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンジスチレン化フェニルエーテル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール等のポリオキシアルキレンアルキルエーテルやポリオキシエチレン誘導体；ソルビタンモノラウレート等のソルビタン脂肪酸エステル；ポリエキシエチレンソルビタンモノラウレート等のポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル；テトラオレイン酸ポリオキシエチレンソルビット等のポリオキシアルキレンソルビトール脂肪酸エステル；グリセロールモノステアレート等のグリセリン脂肪酸エステル；ポリエチレングリコールモノラウレート等のポリオキシアルキレン脂肪酸エステル；ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油等のポリオキシアルキレン硬化ヒマシ油；ポリオキシエチレンアルキルアミン、アルキルアルカノールアミド等が挙げられる。

#### 【0021】

陽イオン性の界面活性剤としては、例えは、ココナットアミンアセテート等のアルキルアミン塩、ラウリルトリメチルアンモニウムクロライド等の第四級アンモニウム塩等が挙げられる。

#### 【0022】

両性の界面活性剤としては、例えは、ラウリルベタイン等のアルキルベタイン、ラウリルジメチルアミンオキサイド等のアルキルアミンオキサイド等が挙げられる。

#### 【0023】

陰イオン性の界面活性剤としては、例えは、ラウリル硫酸ナトリウム等のアルキル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム等のポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ドデシルベンゼンセンスルフォン酸等のアルキルベンゼンスルフォン酸塩、脂肪酸石けん、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸カリウムやアルケニルコハク酸ジカリウム等のカリウム塩、アルカンスルホン酸ナトリウム等のナトリウム塩；ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテルリン酸エステル等のポリオキシアルキレンアルキルフェニルエーテルリン酸エステル；トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリス（2-クロロエチル）ホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジル・ジフェニルホスフェート、ジ-2-エチルヘキシルホスフェート、メチルアシッドホスフェート、メチルアシッドホスフェート、エチルアシッドホスフェート、プロピルアシッドホスフェート、イソプロピルアシッドホスフェート、ブチルアシッドホスフェート、ラウリルアシッドホスフェート、ステアリルアシッドホスフェート、2-エチルヘキシルアシッドホスフェート、イソデシルアシッドホスフェート、フェニルホスホン酸、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテルリン酸エステル等のリン酸エステル等が挙げられる。

#### 【0024】

上記耐湿性向上剤としては、なかでも、SP値（溶解度パラメーター）がポリビニルアセタール樹脂及び後述する可塑剤よりも大きく、水よりも小さいものが好ましい。なかでもSP値（溶解度パラメーター）が15.0～35.0 MPa<sup>1/2</sup>であるものが好

述じめる。

ここでSP値とは、対象となる物質の分散性、極性及び双極子モーメントを総合して評価する値であり、下記式(1)により求めることができる。

### 【0025】

#### 【数1】

$$SP\text{値} = \sqrt{(\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2)}$$

$\alpha$  : 分散力

$\beta$  : 極性

$\gamma$  : 双極子モーメント

SP値が15.0 MPa<sup>1/2</sup>未満であると、水分への吸着力が低すぎるために、ヘイズ値上昇の原因となる凝集バルク水の発生を抑えることができず、35.0 MPa<sup>1/2</sup>を超えると、ポリビニルアセタール樹脂や可塑剤との親和性の低さから相分離を起こしてしまうことがある。より好ましい下限は10 MPa<sup>1/2</sup>、より好ましい上限は30 MPa<sup>1/2</sup>である。

### 【0026】

また、SP値の測定が困難な場合には比誘電率により判断を行ってもよい。即ち、上記耐湿性向上剤としては、常温常圧における比誘電率が15~50であるものが好適である。15未満であると、ヘイズ値上昇の原因となる凝集バルク水の発生を抑えることができず、50を超えると、ポリビニルアセタール樹脂や可塑剤との親和性の低さから相分離を起こしてしまうことがある。より好ましい下限は10、より好ましい上限は30である。

### 【0027】

このようなSP値又は比誘電率を有する耐湿性向上剤としては、例えば、リン酸エステル系化合物、エタノールやプロパノールのような低級アルコール等が挙げられる。なかでも、リン酸エステル系化合物が特に好適である。

### 【0028】

上記耐湿性向上剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が20重量部である。0.01重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、20重量部を超えると、中間膜の製膜時に発泡したり、合わせガラスにした際に、発泡を生じたり、中間膜とガラスとの接着力が上がりすぎることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

### 【0029】

本発明の合わせガラス用中間膜は、キレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を含有することが好ましい。キレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を併用することにより、本発明の合わせガラス用中間膜の耐湿性を更に向上させることができる。

### 【0030】

上記キレート剤としては特に限定されず、例えば、EDTA類及び $\beta$ -ジケトン類等が挙げられる。なかでも、 $\beta$ -ジケトン類は、可塑剤や樹脂との相溶性のよいことから好ましく、特にアセチルアセトンが好適である。アセチルアセトン以外にもベンゾイルトリフルオロアセトンやジビバロイルメタン等を用いてもよい。

### 【0031】

上記キレート剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が20重量部である。0.005重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、20重量部を超えると、中間膜の製膜時に発泡したり、合わせガラスにした際に発泡を生じたりすることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

### 【0032】

上記1つ以上のカルボキシル小基をもつ樹脂としては、例えは、酢酸、脂肪族カルボン酸、芳香族カルボン酸、芳香族ジカルボン酸等が挙げられる。なかでも、炭素数2～18の脂肪族カルボン酸が好ましく、より好ましくは炭素数2～10の脂肪族カルボン酸である。具体的には、例えは、酢酸、プロピオン酸、n-酪酸、2エチル酪酸、n-ヘキサン酸、2エチルヘキサン酸、n-オクタン酸等が挙げられる。なかでも、2エチルヘキサン酸が特に好適である。

### 【0033】

上記1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が20重量部である。0.005重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、10重量部を超えると、得られる中間膜が黄変したり、ガラスと中間膜との接着性を損なったりすることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

### 【0034】

本発明の合わせガラス用中間膜は、更に、可塑剤を含有することが好ましい。上記可塑剤としては通常ポリビニルアセタール樹脂に使用されるものであれば特に限定されず、中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えは、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤；有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。

### 【0035】

上記一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えは、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール又はトリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプチル酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸(n-ノニル酸)又はデシル酸等の一塩基性有機酸との反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコール-ジカプロン酸エステル、トリエチレングリコール-ジ-2-エチル酪酸エステル、トリエチレングリコール-ジ-n-オクチル酸エステル、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキシル酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

### 【0036】

上記多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えは、アジピン酸、セバシン酸又はアゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4～8の直鎖状又は分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルピトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。

上記有機リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えは、トリプトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロビルホスフェート等が挙げられる。

### 【0037】

上記可塑剤としては、なかでも、トリエチレングリコール-ジ-エチルブチラート、トリエチレングリコール-ジ-エチルヘキソエート、トリエチレングリコール-ジ-ブチルセバケート等が好適に用いられる。

### 【0038】

上記可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20～60重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜や合わせガラスの衝撃吸収性が不充分となることがあり、60重量部を超えると、可塑剤がブリードアウトして得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性やガラスと中間膜

### 【0039】

本発明の合わせガラス用中間膜は、マロン酸エステル系化合物、シュウ酸アニリド系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物等の紫外線吸収剤；有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、变成シリコーンオイル等の接着力調整剤；酸化防止剤、光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の従来公知の添加剤を含有してもよい。

### 【0040】

本発明の合わせガラス用中間膜を製造する方法としては特に限定されないが、例えば、上記ポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽粒子、耐湿性向上剤、キレート剤、少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物、及び、必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラスチックグラフ、ニーダー、パンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法等が挙げられる。

### 【0041】

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記構成からなることにより、遮熱性能に優れるとともに、極めて耐湿性に優れ、吸湿によりヘイズ値が上昇したりすることはない。

本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

### 【0042】

本発明の合わせガラスに使用するガラスとしては特に限定されず一般に使用されている透明板ガラスを使用することができ、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス等の各種無機ガラス；ポリカーボネート板；ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス等が挙げられる。これらのガラスは、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。なかでも、熱線吸収ガラスを用いることが好ましい。

### 【0043】

上記熱線吸収ガラスとしては特に限定されないが、なかでもグリーンガラスが好適である。また、上記熱線吸収ガラスのなかでも、可視光透過率75%以上、波長領域900～1300nmにおいて透過率が65%以下である熱線吸収ガラスを用いれば、例えばITO微粒子の赤外線カット性が1300nmより長波長側で大きく、900～1300nmの領域では比較的小さいことから、同じ可視光線透過率に対しても日射透過率を低くすることができ、日射カット率を向上させることができる。

上記熱線吸収ガラスは、中間膜を挟み込む1対のガラスのうち、両側に用いてもよいし、片側のみに用いてもよい。

また、ガラスの代わりにポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート等の透明性のプラスチックを用いてもよい。

上記ガラス等の厚みとしては、用途によって適宜選択されればよく、特に限定されるものではない。

本発明の合わせガラスは、本発明の合わせガラス用中間膜を使用して、従来公知の方法により製造することができる。

### 【0044】

本発明の合わせガラスの用途としては特に限定されず、例えば、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス；航空機や電車等の乗り物のガラス部位、建築用ガラス等が挙げられる。なかでも、自動車のサイドガラス等のように、合わせガラスの側面が露出しているような場合に特に好適である。

### 【0045】

本発明の合わせガラスを、側面が露出しているような用途に用いる場合、該露出した側面に面した部分にのみ本発明の合わせガラス用中間膜が用いられていても充分な効果が得られる。よい。

凹上及び凹下にレリーフノット状の凹凸を有する凹面を小なり狭い凹を小したもの。凹上及び凹下において(a)は、合わせガラスの正面図であり、(b)は、一点破線部分において切断した断面図である。

図1に示した合わせガラスでは、露出した側面に面した部分全体に本発明の合わせガラス用中間膜が、その他の部分には従来の合わせガラス用中間膜が用いられている。

図2に示した合わせガラスでは、ガラスの全体に用いられた従来の合わせガラス用中間膜の露出した側面に面した部分に切り割り状に本発明の合わせガラス用中間膜が挿入された構造である。

### 【発明の効果】

#### 【0046】

本発明によれば、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することができる。

### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0047】

##### (実施例1)

###### (1) ポリビニルブチラールの合成

純水2890重量部に、平均重合度1700、鹼化度99.2モル%のポリビニルアルコール275重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を15℃に温度調節し、35重量%の塩酸201重量部とn-ブチルアルデヒド157重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を60℃で3時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は68.5モル%であった。

#### 【0048】

###### (2) 热線吸収剤分散可塑剤の調製

トリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)40重量部に対しITO微粒子を1重量部仕込み、分散剤及び耐湿性向上剤としてポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル(SP値:25.2MPa<sup>1/2</sup>、誘電率:38.3)1.0重量部を添加して、水平型のマイクロビーズミルにて可塑剤中にITO微粒子を分散させて熱線吸収剤分散可塑剤を作製した。分散液中のITO微粒子の平均粒径は35nmであった。

#### 【0049】

###### (3) 合わせガラス用中間膜の製造

得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、熱線吸収剤分散可塑剤を40重量部、更に全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酔酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。

膜中のITO微粒子の平均粒径は56nmであり、粒径が100nm以上の粒子は観察されなかった。

#### 【0050】

###### (4) 合わせガラスの製造

得られた合わせガラス用中間膜を、その両端から透明なフロートガラス(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90℃で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

#### 【0051】

##### (実施例2)

熱線吸収剤分散可塑剤の調製において、分散剤及び耐湿性向上剤としてポリグリセリン脂

例 1 と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

### 【0052】

#### (実施例3)

熱線吸収剤分散可塑剤の調製において、更に、アセチルアセトン 1.0 重量部を加えた以外は実施例 1 と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

### 【0053】

#### (実施例4)

熱線吸収剤分散可塑剤の調製において、更に、2エチルヘキサン酸 1.0 重量部を加えた以外は実施例 1 と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

### 【0054】

#### (実施例5)

熱線吸収剤分散可塑剤の調製において、更に、アセチルアセトン 1.0 重量部及び 2エチルヘキサン酸 1.0 重量部を加えた以外は実施例 1 と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

### 【0055】

#### (比較例1)

ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステルを配合しなかった以外は実施例 1 と同様の方法により熱線吸収剤分散可塑剤を調製した。この分散液中の ITO 微粒子の平均粒径は 289 nm であった。

得られた熱線吸収剤分散可塑剤を用いた以外は実施例と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

なお、膜中の ITO 微粒子の平均粒径は 310 nm であり、粒径が 100 nm 以上の粒子も観察された。

### 【0056】

#### (評価)

実施例 1 ~ 5 及び比較例 1 で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて以下の方法により評価を行った。

結果を表 1 に示した。

### 【0057】

#### (1) 可視光透過率、日射透過率、及び、ヘイズ値の測定

直記分光光度計（島津製作所社製「UV3100」）を使用して、得られた合わせガラスの 300 ~ 2500 nm の透過率を測定し、JIS Z 8722 及び JIS R 3106 に従って、380 ~ 780 nm の可視光透過率及び 300 ~ 2500 nm の日射透過率を求めた。また、JIS K 6714 に準拠してヘイズ値を測定した。

### 【0058】

#### (2) 耐湿試験 1

得られた合わせガラス用中間膜を蒸留水中に全体が完全に漬かるように浸漬し、23°C、24 時間放置した。放置後の合わせガラス用中間膜のヘイズ値を JIS K 6714 に準拠した方法により測定した。

### 【0059】

#### (3) 耐湿試験 2

合わせガラスを 50°C、95% RH 環境下、及び、80°C、95% RH 環境下にて 500 hr 放置した後、合わせガラスの端部からの白化距離および周辺部の発泡度合いを目視確認し、良好なものに関しては○、不良である場合は×とした。

### 【0060】

	光学性能			耐湿試験1	耐湿試験2
	可視光線透過率 (%)	日射透過率 (%)	ヘイズ値 (%)	ヘイズ値 (%)	判定
実施例1	83.1	56.2	0.5	35.5	○
実施例2	83.6	56.7	0.5	37.5	○
実施例3	82.9	56.0	0.5	38.5	○
実施例4	83.9	57.1	0.5	34.9	○
実施例5	84.0	57.4	0.5	35.1	○
比較例1	81.2	56.9	1.3	75.6	×:白化度合いが大きく、 気泡が認められた

## 【産業上の利用可能性】

## 【0061】

本発明によれば、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0062】

【図1】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す模式図である。

【図2】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す模式図である。

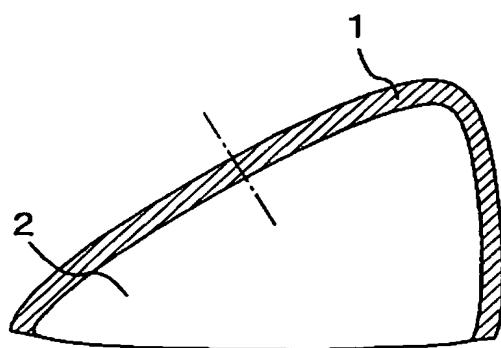
## 【符号の説明】

## 【0063】

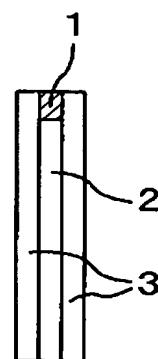
- 1 本発明の合わせガラス用中間膜
- 2 従来の合わせガラス用中間膜
- 3 ガラス

【右側面】 凸面  
【図 1】

(a)

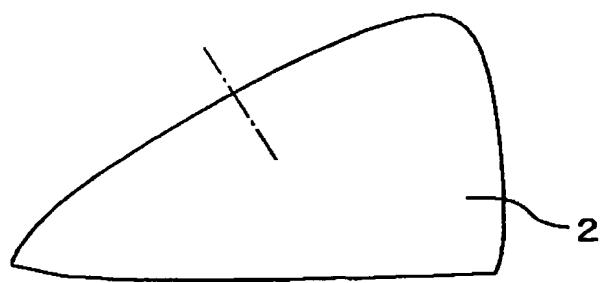


(b)

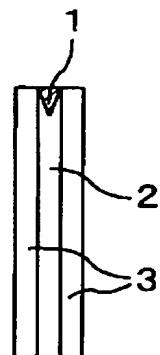


【図 2】

(a)



(b)



BEST AVAILABLE COPY

【要約】

【課題】 吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた遮熱合わせガラス用中間剤及び遮熱合わせガラスを提供する。

【解決手段】 ポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽粒子及び耐湿性向上剤を含有する合わせガラス用中間膜。

【選択図】 なし

000002174

19900829

新規登録

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

積水化学工業株式会社

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP2005/012510

International filing date: 06 July 2005 (06.07.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-199639  
Filing date: 06 July 2004 (06.07.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 09 September 2005 (09.09.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**BEST AVAILABLE COPY**